

PATENT APPLICATION

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re the Application of:

Kenichi MURAKAMI et al.

Group Art Unit: Not yet assigned

Application No.: Not yet assigned

Examiner: Not yet assigned

Filed: November 25, 2003

Attorney Dkt. No.: 108421-00084

For: PROCESS FOR PRODUCTION OF ELECTRODE FOR ELECTRIC DOUBLE
LAYER CAPACITOR

CLAIM FOR PRIORITY

Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

Date: November 25, 2003

Sir:

The benefit of the filing date(s) of the following prior foreign application(s) in the following foreign country is hereby requested for the above-identified patent application and the priority provided in 35 U.S.C. §119 is hereby claimed:

Foreign application No. 2002-348187, filed November 29, 2003, in Japan.

In support of this claim, certified copy of said original foreign application is filed herewith.

It is requested that the file of this application be marked to indicate that the requirements of 35 U.S.C. §119 have been fulfilled and that the Patent and Trademark Office kindly acknowledge receipt of these/this document.

Please charge any fee deficiency or credit any overpayment with respect to this paper to Deposit Account No. 01-2300.

Respectfully submitted,



Charles M. Marmelstein
Registration No. 25,895

Customer No. 004372
ARENT FOX KINTNER PLOTKIN & KAHN, PLLC
1050 Connecticut Avenue, N.W.,
Suite 400
Washington, D.C. 20036-5339
Tel: (202) 857-6000
Fax: (202) 638-4810
CMM/jns

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 2 年 1 1 月 2 9 日
Date of Application:

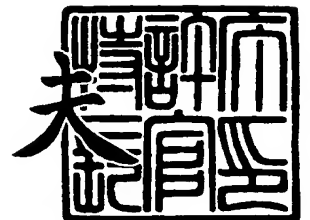
出 願 番 号 特 願 2 0 0 2 - 3 4 8 1 8 7
Application Number:
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 2 - 3 4 8 1 8 7]

出 願 人 本田技研工業株式会社
Applicant(s): 大同メタル工業株式会社

2 0 0 3 年 1 0 月 3 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号 出証特 2 0 0 3 - 3 0 8 1 9 5 5

【書類名】 特許願

【整理番号】 H102-3500

【提出日】 平成14年11月29日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H01G 9/016
H01G 9/058

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研究所内

【氏名】 村上 顕一

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研究所内

【氏名】 岩井田 学

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研究所内

【氏名】 小山 茂樹

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県犬山市大字前原字天道新田 大同メタル工業株式会社内

【氏名】 尾崎 幸樹

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県犬山市大字前原字天道新田 大同メタル工業株式会社内

【氏名】 筒井 正典

【特許出願人】

【識別番号】 000005326
【住所又は居所】 東京都港区南青山 2 丁目 1 番 1 号
【氏名又は名称】 本田技研工業株式会社
【代表者】 吉野 浩行

【特許出願人】

【識別番号】 591001282
【住所又は居所】 愛知県名古屋市中区栄 2 丁目 3 番 1 号 名古屋広小路ビル
ディング 1 3 階
【氏名又は名称】 大同メタル工業株式会社
【代表者】 判治 誠吾

【代理人】

【識別番号】 100096884
【弁理士】
【氏名又は名称】 末成 幹生

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 053545
【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1
【物件名】 図面 1
【物件名】 要約書 1
【包括委任状番号】 0101517

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 電気二重層コンデンサ用電極体の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 活性炭と導電性カーボンと結合剤とを備えた電極部形成シートと、導電性接着剤を表面に塗布した集電体シートとを接合する電気二重層コンデンサ用電極体の製造方法において、上記集電体シートと上記電極部形成シートとの接合時に上記電極部形成シート中にアルコール系溶媒を上記電極部形成シートの重量に対し 2～10 重量%含有させたことを特徴とする電気二重層コンデンサ用電極体の製造方法。

【請求項 2】 前記アルコール系溶媒は、前記活性炭と前記導電性カーボンと前記結合剤とを混練する際に用いる成形助剤であることを特徴とする請求項 1 に記載の電気二重層コンデンサ用電極体の製造方法。

【請求項 3】 前記電極部形成シートの圧延後に前記アルコール系溶媒を上記電極部形成シートに含有させることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の電気二重層コンデンサ用電極体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、大容量・高出力の電気二重層コンデンサに使用するのに適した電気二重層コンデンサ用電極体の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

電気二重層コンデンサは、従来の二次電池のように充放電において化学反応を伴わないため長寿命であり、かつ高サイクル特性を有し、さらに大電流による充放電が可能になるなどの特徴から、近年、新たな蓄電源として、また、車載用を始めとする各種機器の駆動用電源等として注目を集めており、特に、大容量・高出力の電気二重層コンデンサの開発が進められている。

【0003】

このような電気二重層コンデンサ用電極体の製造方法として、アルミニウム箔

等の集電体シート上に導電性接着剤を塗布し、この導電性接着剤を介して電極部形成シートを接合する方法が知られている（例えば、特許文献1参照。）。この方法では、まず活性炭と導電性カーボンと結合剤と溶媒とを加えて混練し、圧延・乾燥することによって電極部形成シートを得、続いてカーボンブラックやグラファイト等の導電性フィラーとポリビニルアルコール（PVA）等の樹脂成分からなる結着剤とを混合して導電性接着剤を調製する。次にこの導電性接着剤を集電体シート上に塗布して電極部形成シートと接合後、乾燥する。

【0004】

【特許文献1】

特開平11-162787号公報（要約書）

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、電極部形成シートの製造工程において電極部形成シートを完全に乾燥させてしまうと、集電体シートに塗布した導電性接着剤が、電極部形成シートの間隙に大量に吸収されてしまうことから、接合強度を確保するためには使用する導電性接着剤量をより多く塗布しなければならないという問題がある。さらに、電極部形成シート中の間隙に導電性接着剤が吸収されることによって、完成後の電気二重層コンデンサの静電容量が低下してしまい、かつ重量が増加してしまうという問題を有していた。特に車載用駆動電源として用いる場合は、電気二重層コンデンサの単セルを多数直列に接続して用いることから、単セルのわずかな重量増加及び静電容量の低下であっても車載用駆動電源全体としては、致命的な欠陥となり得る。また、車載用駆動電源として用いる場合には、過酷な環境で使われるため、電解液が高温になり、界面剥離が発生し易い。したがって、接合強度をより高める必要がある。

【0006】

本発明は、上記状況に鑑みてなされたもので、使用する導電性接着剤が少なくても電極部形成シートと集電体シートとの接合強度を十分に確保できる電気二重層コンデンサ用電極体の製造方法を提供する。

【0007】

【課題を解決するための手段】

本発明の電気二重層コンデンサ用電極体の製造方法は、活性炭と導電性カーボンと結合材とを備えた電極部形成シートと、導電性接着剤を表面に塗布した集電体シートとを接合する電気二重層コンデンサ用電極体の製造方法において、集電体シートと電極部形成シートとの接合時に電極部形成シート中にアルコール系溶媒を電極部形成シートの重量に対して2～10重量%含有させたことを特徴としている。

【0008】

上記のような本発明の電気二重層コンデンサ用電極体の製造方法によると、電極部形成シート内部の活性炭や導電性カーボンどうしの間隙及び活性炭や導電性カーボン表面の空孔がアルコール系溶媒を2～10重量%含んでいるので、集電体シートの表面に塗布された導電性接着剤が電極部形成シート内部の間隙・空孔に吸収されるのが抑制され、導電性接着剤を接合界面近傍に留まらせることが可能である。

【0009】

したがって、本発明の電気二重層コンデンサ用電極体の製造方法によると、少量の導電性接着剤であっても電極部形成シートと集電体シートとの接合界面近傍に留まることが可能なため、接合強度を十分に確保することができる。また、電極部形成シートの内部まで導電性接着剤が吸収されないため、結果として電気二重層コンデンサの重量増加及び静電容量の低下を抑制することが可能である。

【0010】**【発明の実施の形態】**

以下、本発明の実施形態について、詳細に説明する。

本発明の導電性接着剤は、導電性フィラーと結着剤と分散剤とを備えていると好適である。ここで、導電性フィラーとしては、カーボンブラック、グラファイト等の炭素系粒子が望ましく、さらには、大小の導電性カーボン粒子を共に備えていることが望ましい。

【0011】

大粒径のカーボン粒子のみでは、マクロな導電パスは確保できる反面、接着力

・接触面積に乏しく接着界面で容易に剥離してしまい、小粒径のカーボン粒子のみでは、接着力・接触面積の観点からは好ましい反面、マクロな導電パスに乏しいからである。本発明で使用する導電性接着剤においては、大粒径のカーボン粒子としてはグラファイトを、小粒径のカーボン粒子としてはカーボンブラックを添加している。添加する割合は、30:70～70:30の範囲が望ましく、本発明ではより好ましい55:45の割合で添加させている。

【0012】

本発明の導電性接着剤では結着剤としてポリビニルアルコールを用いているが、特にこれのみに限定されるものではなく、ポリ酢酸ビニル、ポリアクリル酸エステル、エチレン酢酸ビニル共重合体、アイオノマー樹脂、ポリビニルブチラール、ニトロセルロース、スチレンブタジエンゴム、ブタジエンアクリロニトリルゴム、ネオプレンゴム、フェノール樹脂、メラミン樹脂、ポリウレタン樹脂、尿素樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂等、他の樹脂を用いることもできる。

【0013】

本発明の導電性接着剤に用いる溶媒としては、水以外にもメタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、ブタノール、トリクロロエチレン、ジメチルホルムアミド、エチルエーテル、アセトン等、各種の溶媒を単独又は複数種類混合して用いることができる。

【0014】

本発明の導電性接着剤においては、分散剤としてカルボキシメチルセルロースを用いている。これは、導電性フィラーであるカーボンブラック及びグラファイトが凝集するのを防ぐためのものである。

【0015】

本発明の集電体シートとしては、各種の金属箔を用いることができるが、一般的にはアルミニウム箔が好適である。特に本発明においては、アルミニウム箔の表面にエッチング処理を施したものを使用しており、このエッチング処理により生じた表面の微細なピット（窪み）に導電性接着剤中のカーボン粒子が入り込むことにより強固に接着され、導電性接着剤と集電体シートの界面剥離を抑制する

ことが可能である。本発明で用いる集電体シートの表面性状は、径が $4 \sim 10 \mu\text{m}$ で深さが $4 \sim 15 \mu\text{m}$ のピットを単位面積 (1 cm^2) あたり 100,000 個以上有し、その面積が 50% 以下の占有率であると好適である。

【0016】

本発明の電極部形成シートに含有させるアルコール系溶媒の含有量は 2 ~ 10 重量%であることが望ましく、さらには 3 ~ 6 %であることが望ましい。この範囲よりも少ないと電極部形成シートによる導電性接着剤の吸収を十分に抑制することができず、この範囲よりも多いと電極部形成シートに導電性接着剤が吸収されるのを妨げるので、かえって導電性接着剤の本来の接着効果が得られなくなる。

【0017】

アルコール系溶媒の添加量を調整する段階としては、材料混合時が考えられ、また精度向上のためには電極部形成シートと集電体シートとの接着工程直前に添加することが好ましい。

【0018】

本発明の実際の電極部形成シートの製造においては、接着工程に到達した段階での電極部形成シート中のアルコール系溶媒の含有量は約 12 %となっているので、これを適宜乾燥させることで 2 ~ 10 %の含有量に調整することができる。例えば、30℃の温度下で風速 3 m/秒の温風乾燥を 3 分行うことにより、6 %の含有量の電極部形成シートを得ることができる。このように、温風乾燥の条件を適宜調整することで、目的の含有量の電極部形成シートを得ることができる。

【0019】

本発明においては、アルコール系溶媒が、活性炭と導電性カーボンと結合材とを混練する際に用いる成形助剤であると好適である。接合工程において電極部形成シートに含有させるアルコール系溶媒と成形助剤が異なる場合では、成形後に成形助剤を除去する工程と接合時にアルコール系溶媒を 2 ~ 10 重量%添加する工程とが必要になるが、成形助剤とアルコール系溶媒が同一であれば、例えば電極部形成シートの乾燥時間の調整のみで済み、余分な材料及び工程が不要になることから、コスト的に有利である。

【0020】

また、本発明においては、電極部形成シートの圧延後に電極部形成シートにアルコール系溶媒を含有させることもできる。電極部形成シートの製造工程において、成形助剤を添加しない場合、あるいは含有されているアルコール系溶媒が自然乾燥等の原因により揮発して含有量が2重量%を下回ってしまった場合であっても、接合工程の直前にアルコール系溶媒を添加することで本発明の効果を得ることができる。また、電極部形成シート中のアルコール系溶媒の含有量を増加させる必要がある場合であっても、同様に接合工程の直前にアルコール系溶媒を添加することで本発明の効果を得ることができる。また、接合工程の直前に添加した場合、アルコール系溶媒量を正確に含有させることができるというメリットがある。

【0021】**【実施例】**

以下、実施例により本発明をより詳細に説明する。なお、本発明はこれに限定されるものではない。

1. 導電性接着剤の作製

以下の配合の原料を混合・攪拌し、実施例の導電性接着剤を得た。

- ・ ポリビニルアルコール
(クラレポバール R-1130、(株)クラレ製) 3重量%
- ・ カーボンブラック (デンカブラック、電気化学工業(株)製) 10重量%
- ・ グラファイト (SP-300、日本黒鉛工業(株)製) 10重量%
- ・ カルボキシメチルセルロース
(分散剤、セロゲン F-3H、第一工業製薬(株)製) 3重量%
- ・ 精製水 74重量%

【0022】**2. 電極部形成シートの作製**

以下の配合の原料を混合・攪拌し、原料粉体の均一分散を行った。次に、この混合物を混練装置に移し、 0.5 ± 0.05 MPa の条件下で2軸混練による一体化処理を10分間行い、固形物を得た。次に、この固形物を粉碎し、粉碎粉を

得た。続いてこの粉碎粉をカレンダーロールを用いてプレシート成形し、さらに圧延ロールを用いた圧延工程によりシートの厚みを調整し、実施例の電極部形成シートを得た。

- ・活性炭粉末 (KH-1200、呉羽化学工業 (株) 製) 70 重量%
- ・導電性カーボン (デンカブラック、電気化学工業 (株) 製) 8.5 重量%
- ・PTFE 樹脂 (テフロン (登録商標) 6J、三井デュポンフロロケミカル (株) 製) 8.5 重量%
- ・イソプロピルアルコール (和光純薬工業製) 13 重量%

【0023】

3. 電極 A～I の作製

上記で得られた電極部形成シートを乾燥炉に入れ、温風乾燥条件を調整することでイソプロピルアルコールを適宜揮発させ、アルコール系溶媒含有量が 0～12 重量%の電極部形成シート A～I を作製した。次に、この電極部形成シート A～I をそれぞれ長尺のエッチングアルミニウム箔 (ED-402H、日本ケミコン (株) 製) の片面にグラビアロールにより上記導電性接着剤を塗布し、上記電極部形成シートを重ね合わせてロールプレスでの圧力 (0.1 MPa) で加圧接合した。このシートを 160℃で 12 時間真空乾燥して成形助剤であるイソプロピルアルコールを除去し、電極 A～I を得た。

【0024】

4. 接着力の評価

上記で得られた電極 A～I について、集電体シート側・電極部形成シート側に両面テープで引張試験器 (AIKO ENGINEERING MODEL-1310) に接着し、離反する方向に 5 mm/分の条件で引っ張り、集電体シートと電極部形成シートとの間に剥離が発生するまでの接着力を測定した。この測定結果を表 1 に示す。なお、電極 A～D 及び電極 H～I は、表 1 に示した張力を加えることで接合面の一部に接着界面での剥離が見られたが、電極 E～G では、界面剥離が起きる前に電極部形成シートが破壊された。

【0025】

【表 1】

	アルコール系溶媒 含有量 (重量%)	接着力 (g/cm^2)
電極 A	0	1 0 0
電極 B	0. 5	2 6 0
電極 C	1. 0	3 5 0
電極 D	1. 5	4 6 0
電極 E	2. 0	5 3 0
電極 F	3. 0	5 4 0
電極 G	1 0. 0	5 3 0
電極 H	1 1. 0	5 1 0
電極 I	1 2. 0	5 0 0

【0026】

電極部形成シートのアルコール系溶媒の含有量と接着力の関係を図 1 に示した。含有量が 0 ～ 2 % の範囲では含有量と接着力がほぼ比例関係を示し、2 ～ 10 % の範囲で良好な接着力を示すことが分かる。また、10 % を超えると導電性接着剤の吸収を妨げるため、十分な接着力が得られないことが分かる。

【0027】

アルコール系溶媒の含有量と必要接着剤量の関係を図 2 に示した。アルコール系溶媒の含有量が 0 % では電極部形成シートへ導電性接着剤が吸収されるため必要接着剤量は最大値を示し、その後含有量の増加に伴って必要接着剤量は減少する。2 ～ 10 % の範囲でほぼ一定の値を示すが、3 ～ 6 % がさらに望ましい最低値を示すことが分かる。

【0028】

【発明の効果】

以上説明したように、本発明の電気二重層コンデンサ用電極体の製造方法により、使用する導電性接着剤が少なくても電極部形成シートと集電体シートとの接合強度を十分に確保することができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 電極部形成シート中のアルコール系溶媒含有量と接着力の関係を示すグラフである。

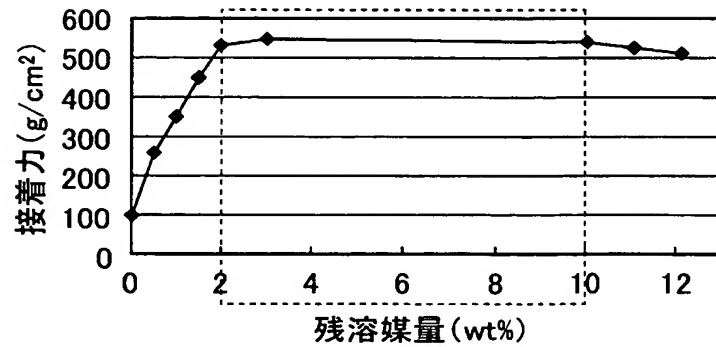
【図 2】 電極部形成シート中のアルコール系溶媒の含有量と必要接着剤量の関係を示すグラフである。

【書類名】

図面

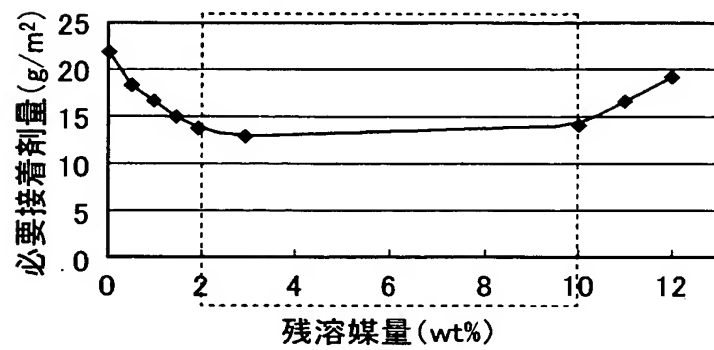
【図 1】

残溶媒量と接着力の関係



【図 2】

残溶媒量と必要接着剤量の関係



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 集電体シートと電極部形成シートを少量の導電性接着剤によって強固に接合することができる電気二重層コンデンサ用電極体の製造方法を提供する。

【解決手段】 電極部形成シートの作製時に添加する成形助剤のアルコール系溶媒を除去せずに電極部形成シート中に含有させておき、電極部形成シートと集電体シートとを導電性接着剤により接合する電気二重層コンデンサ用電極体の製造方法。また、電極部形成シートと集電体シートとの接合工程直前に電極部形成シート中にアルコール系溶媒を添加する電気二重層コンデンサ用電極体の製造方法。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2002-348187
受付番号	50201814354
書類名	特許願
担当官	佐々木 吉正 2424
作成日	平成 14 年 12 月 2 日

< 認定情報・付加情報 >

【特許出願人】

【識別番号】	000005326
【住所又は居所】	東京都港区南青山二丁目 1 番 1 号
【氏名又は名称】	本田技研工業株式会社

【特許出願人】

【識別番号】	591001282
【住所又は居所】	愛知県名古屋市中区栄二丁目 3 番 1 号 名古屋広 小路ビルヂング 13 階
【氏名又は名称】	大同メタル工業株式会社

【代理人】

申請人	
【識別番号】	100096884
【住所又は居所】	東京都中央区京橋 2 丁目 6 番 14 号 日立第 6 ビ ル 4 階 末成国際特許事務所
【氏名又は名称】	末成 幹生

次頁無

特願 2 0 0 2 - 3 4 8 1 8 7

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 5 3 2 6]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 9 月 6 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都港区南青山二丁目 1 番 1 号

氏 名

本田技研工業株式会社

特願 2 0 0 2 - 3 4 8 1 8 7

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[5 9 1 0 0 1 2 8 2]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 1 2 月 2 7 日

[変更理由]

新規登録

住 所

愛知県名古屋市北区猿投町 2 番地

氏 名

大同メタル工業株式会社

2. 変更年月日

2 0 0 2 年 9 月 1 7 日

[変更理由]

住所変更

住 所

愛知県名古屋市中区栄二丁目 3 番 1 号 名古屋広小路ビルヂン

グ 1 3 階

氏 名

大同メタル工業株式会社